

# 利用 $[\text{Fe}/\text{Pt}]_n$ 多层膜降低 $L1_0$ -FePt 有序化温度\*

李宝河<sup>1)2)</sup> 黄 阔<sup>1)3)</sup> 杨 涛<sup>1)</sup> 翟中海<sup>1)</sup> 朱逢吾<sup>1)</sup>

<sup>1)</sup> 北京科技大学材料物理与化学系, 北京 100083)

<sup>2)</sup> 北京工商大学数理部, 北京 100037)

<sup>3)</sup> 金日成综合大学物理系, 朝鲜平壤)

(2004 年 8 月 19 日收到, 2004 年 9 月 6 日收到修改稿)

采用直流磁控溅射方法制备了 Fe/Pt 多层膜和 FePt 单层薄膜, 再经不同温度真空热处理得到了有序相  $L1_0$ -FePt 薄膜. 通过 x 射线衍射谱和磁性研究表明, FePt 单层薄膜需要在 500 °C 以上热处理, 才能开始有序化转变, 而 Fe/Pt 多层膜可以降低 FePt 薄膜有序化温度.  $[\text{Fe}(1.5 \text{ nm})/\text{Pt}(1.5 \text{ nm})]_3$  薄膜在 350 °C 热处理后, 有序度已经增加到 0.6, 相应矫顽力达到了 501 kA/m. 多层膜化促进有序化在较低的温度下进行, 这是由于热处理过程中多层膜界面的消失提供了有序化过程额外的驱动力.

关键词:  $L1_0$ -FePt 有序相, 磁控溅射, 有序度, Fe/Pt 多层膜

PACC: 7550S, 7570F, 6150C

## 1. 引 言

超高密度硬盘驱动器近年来得到快速发展, 2003 年报道的实验室演示的最高磁记录面密度已达到  $20.25 \text{ Gb}/\text{cm}^2$ <sup>[1]</sup>. 记录密度要进一步提高, 必须减小磁记录单畴颗粒的尺寸. 当磁记录面密度达到  $155.7 \text{ Gb}/\text{cm}^2$  时, 晶粒尺寸应小于 5 nm, 此时由于热稳定性的需要, 磁记录材料必需具有更高的磁晶各向异性才能克服由于超顺磁效应引起的热退磁现象.  $L1_0$ -FePt 有序合金具有极高的单轴各向异性 ( $k_u = 7 \times 10^6 \text{ J}/\text{m}^3$ )<sup>[2]</sup>, 能够满足超高密度磁记录对热稳定性的需要, 成为下一代磁记录介质的首选材料<sup>[3,4]</sup>.

直接在冷基片上溅射的 FePt 合金薄膜为无序的 fcc 结构, 如图 1(a) 所示. 图 1(b) 为  $L1_0$ -FePt 有序合金的晶体结构. FePt 有序相的形成需要较高的基片温度或热处理温度, 一般高于 500 °C<sup>[3]</sup>. 这对于磁记录介质的实用化是一个很大的困难. 因此, 研究 FePt 低温有序化成为一个重要的研究方向. 研究表明, 可以通过 Fe/Pt 单原子层交替沉积<sup>[5]</sup>、Ag 为底层<sup>[6]</sup>或者加入第三组元<sup>[7]</sup>等方法降低有序化温度.

Endo 等<sup>[8]</sup>报道了利用磁控溅射方法在石英基片上制备  $[\text{Fe}(2.5 \text{ nm})/\text{Pt}(t \text{ nm})]_0$  多层膜, 当 Pt 层厚度与 Fe 层厚度相等时, 得到的矫顽力最高, 但由于实验结果有限, 对多层膜化降低有序化温度的讨论尚不够充分.

本文报道利用磁控溅射方法, 在普通玻璃基片上制备了系列 Pt 层与 Fe 层等厚度比的 Fe/Pt 多层膜以及在相同的条件下制备的 FePt 单层薄膜, 然后在不同温度下真空热处理, 比较了两者的有序化过程和磁性变化, 并研究了多层膜调制周期的变化对样品的磁性和结构的影响. 实验结果表明, 多层膜的界面对降低有序化温度起重要作用.

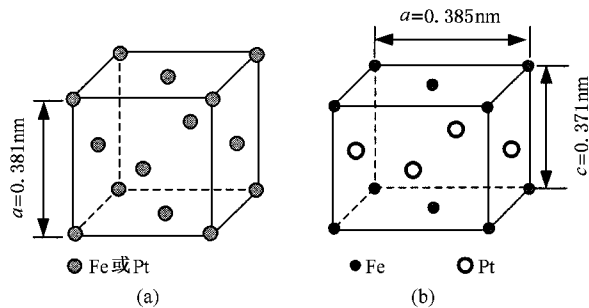


图 1 FePt 合金的晶体结构 (a) 无序 FePt (fcc), (b) 有序  $L1_0$ -FePt (fcc)

\* 国家自然科学基金(批准号 50301002)和北京市科技新星计划(批准号 H020821290120)资助的课题.

## 2. 实 验

采用直流磁控溅射方法制备 Fe/Pt 多层膜, Fe 靶 (99.95%) 和 Pt 靶 (99.95%) 交替溅射沉积在玻璃基片上. 溅射时基片不加热, 溅射前本底真空优于  $4 \times 10^{-5}$  Pa, 溅射时 Ar 工作气压为 0.4 Pa. Fe 和 Pt 的沉积速率分别为 0.076 和 0.079 nm/s. 玻璃基片采用严格的清洗程序进行清洗烘干后使用, 溅射时基片以 18 r/min 的速率旋转. 为便于比较, 采用完全相同的溅射条件, 利用 Fe 和 Pt 靶共溅射的方法制备了总厚度与多层膜相同的 FePt 单层膜.

直接溅射的 Fe/Pt 多层膜和 FePt 单层膜经过 300—550 °C 真空热处理, 热处理时真空度优于  $5 \times 10^{-5}$  Pa, 热处理时间均为 20 min.

利用 x 射线衍射 (XRD) 分析样品的结构 (Cu  $K\alpha$ ) 利用扫描电子显微镜的 x 射线能量色散光谱 (EDS) 分析测量样品的成分, 并用等离子体感应原子发射光谱 (ICP-AES) 对 EDS 结果进行校对, 样品成分为  $\text{Fe}_{49}\text{Pt}_{51}$ . 利用 MicroMag2900 型梯度磁强计 (AGM) 和 Lakeshore-7410 型振动样品磁强计 (VSM) 测量样品的磁性. 薄膜沉积速率由台阶仪测厚度来确定.

## 3. 结果及讨论

图 2 是 FePt (40 nm) 单层膜在不同温度下真空热处理 20 min 的 XRD 谱. 从图 2 可以看出, 在 300—500 °C 真空热处理后基本仍为无序面心立方 (fcc) 结构. 在 550 °C 真空热处理后, 出现了超晶格衍射峰 (001) (110) 和 (002) 等峰, 特别是一些衍射峰发生了分裂: fcc 无序结构的 (200) 峰分裂为 (200) 和 (002) 峰, (202) 峰分裂为 (220) 和 (202) 峰. 这意味着晶格参数  $c$  发生了变化, 晶体结构由 fcc 向 fct 转变, 形成了 FePt-L1<sub>0</sub> 有序结构. (002) (202) 峰出现在原衍射峰的大角度方向, 表明晶格参数  $c$  减小. 由 XRD 谱可以看出, FePt 单层膜的有序化转变温度在 500—550 °C 之间.

图 3 给出了  $[\text{Fe}(1.5 \text{ nm})/\text{Pt}(1.5 \text{ nm})]_3$  多层膜在 300—400 °C 热处理 20 min 后的 XRD 谱. 结果表明, 在 350 °C 热处理后出现了 (001) 和 (110) 衍射峰, 而且 (200) 和 (002) 峰有分开的迹象. 这说明在 350 °C 热处理后, Fe/Pt 多层膜已经开始向有序 fct 结构

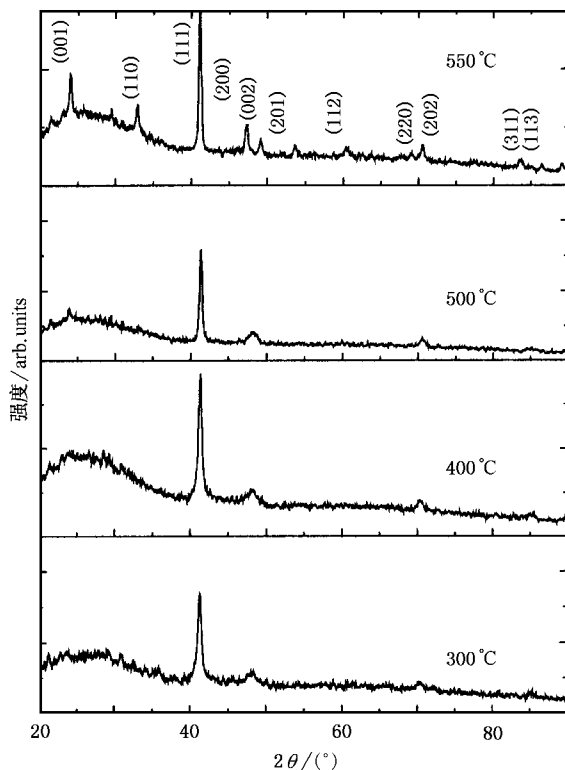


图 2 FePt (40 nm) 薄膜经不同温度热处理后的 XRD 谱

转变. 400 °C 热处理后, 样品为 FePt-L1<sub>0</sub> 有序化更加显著, 基本达到单层薄膜. 500—550 °C 热处理后有序化的程度.

利用布拉格公式可计算  $[\text{Fe}(1.5 \text{ nm})/\text{Pt}(1.5 \text{ nm})]_3$  多层膜的周期厚度  $\Lambda$ ,

$$\Lambda = \frac{\lambda}{2\sin\theta}, \quad (1)$$

式中,  $\lambda$  为 Cu  $K\alpha$  射线波长 0.154 nm,  $\theta$  为小角衍射第一级衍射峰的位置. 图 3 中各小图中的内插图为例的小角 XRD 谱, 由小角衍射峰位置  $\theta$  算得  $\Lambda = 2.96 \text{ nm}$ . 这与实验设计的 3.00 nm 非常接近, 说明我们制备的多层膜周期性很好, 而且也验证了磁控溅射靶的溅射速率测量比较准确.

从小角 XRD 谱还可以看出, 在 400 °C 热处理后小角衍射峰几乎看不到了, 说明 Fe 层和 Pt 层原子互扩散已经相当充分, 多层膜的结构基本消失.

图 4 为 FePt (40 nm) 单层薄膜和  $[\text{Fe}(1.5 \text{ nm})/\text{Pt}(1.5 \text{ nm})]_3$  多层膜在不同温度热处理后的磁滞回线 (外场平行于膜面). FePt 薄膜矫顽力的大小主要由 FePt 有序化的程度决定<sup>[9]</sup>, 因此从样品矫顽力可以推断样品有序化程度的高低. 由图 4(a) 可以看出, FePt 单层膜在 400 °C 处理后矫顽力仅为 23.9 kA/m,

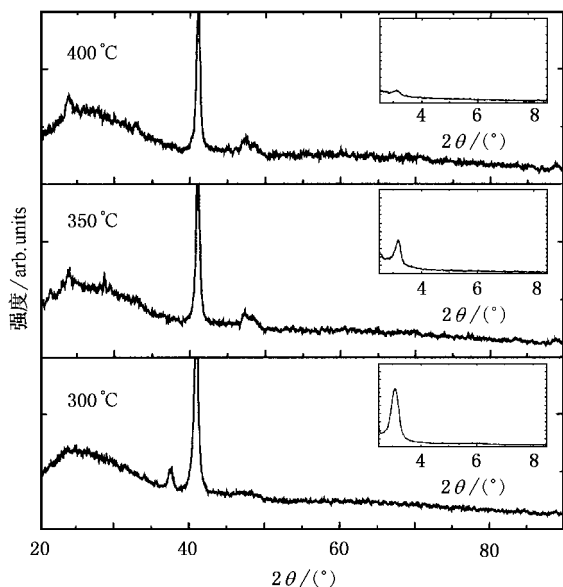
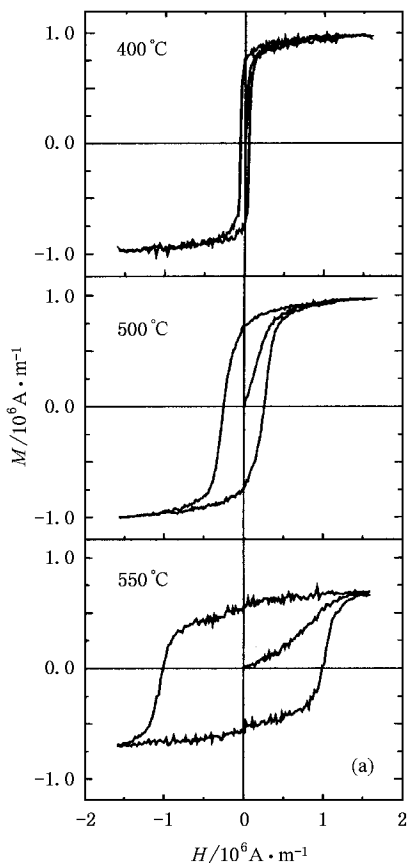


图3 [Fe(1.5 nm)/Pt(1.5 nm)]<sub>3</sub> 多层膜经不同温度热处理后的 XRD 谱

表现为软磁行为,说明此时样品基本处于无序状态. 当在 500 °C 热处理后,样品的矫顽力有所增加但还



是很小,只有 263 kA/m. 550 °C 热处理后的样品表现出非常强的硬磁行为,矫顽力高达 1035 kA/m,说明在这个温度下热处理的样品基本上已完全有序化. 由此可以推断,对于 FePt 单层膜,当热处理时间为 20 min 时,有序化转变温度在 500—550 °C 之间. 这与 XRD 谱显示的结果是一致的.

图 4(b)表明 [Fe(1.5 nm)/Pt(1.5 nm)]<sub>3</sub> 多层膜在 350 °C 热处理后,样品的矫顽力就达到 501 kA/m,说明 Fe/Pt 多层膜化有利于有序化的过程在较低的温度下启动. 在 400 °C 热处理后,样品的矫顽力达到 740 kA/m,已经表现出非常强的硬磁行为,也说明有序化的程度已经比较高了.

图 5 是 [Fe(1.5 nm)/Pt(1.5 nm)]<sub>3</sub> 多层膜和 FePt (40 nm) 单层薄膜有序度参数  $S$  以及矫顽力  $H_c$  与样品热处理温度  $T_a$  之间的关系. 有序度参数的定义为<sup>[8]</sup>

$$S^2 = \frac{1 - (c/a)}{1 - (c/a)_{S_f}} \quad (2)$$

这里  $(c/a)_{S_f}$  为完全有序的 fct 结构的晶格参数之

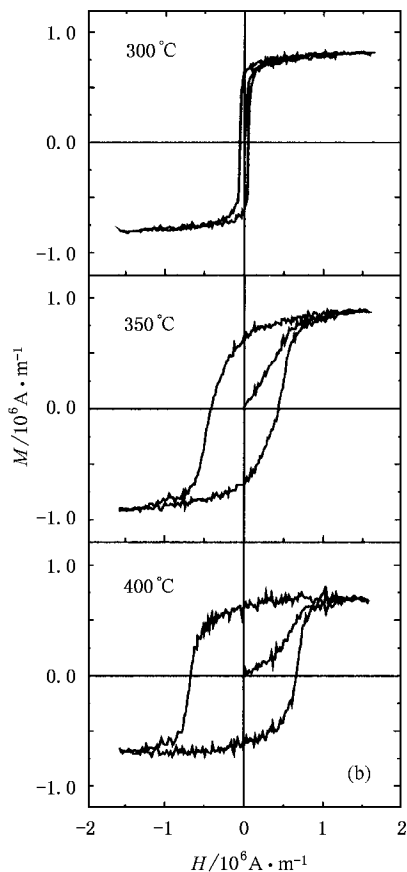


图4 样品在不同温度热处理 20 min 后的磁滞回线 (a)为 FePt(40 nm) 单层薄膜,(b)为 [Fe(1.5 nm)/Pt(1.5 nm)]<sub>3</sub> 多层膜



比,可以从手册上查到  $(c/a)$  由图 2 和图 3 求得.由图 5 可以看出,随着热处理温度的提高,样品的有序度参数和矫顽力增大,有序度参数和矫顽力的变化趋势相当一致.这说明有序化程度越高,样品的矫顽力也越大.  $[\text{Fe}(1.5\text{ nm})/\text{Pt}(1.5\text{ nm})]_3$  多层膜的有序化转变温度比 FePt 单层膜低  $100\text{ }^\circ\text{C}$  以上.多层膜化可以降低 FePt- $\text{Li}_0$  有序相的形成温度. Endo 等<sup>[8]</sup>认为,这是原子在多层膜界面扩散更快的结果.实际上,除这种动力学原因外还存在重要的热力学因素.在临界温度  $T_c$  以下,无序-有序相变的热力学驱动力是有序相与无序相结合能之差.与单层膜相比,热处理过程中多层膜界面的消失提供了有序化过程额外的驱动力.可见多层膜中的界面在热力学和动力学上都有利于有序化温度的降低.

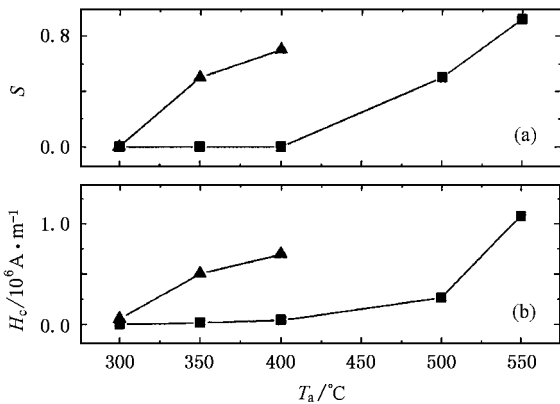


图 5  $[\text{Fe}(1.5\text{ nm})/\text{Pt}(1.5\text{ nm})]_3$  多层膜 ( $\blacktriangle$ ) 和单层膜 FePt ( $\blacksquare$ ) 有序度参数  $S$  及矫顽力  $H_c$  随热处理温度  $T_a$  的变化 (a) 有序度, (b) 矫顽力

在同样的实验条件下,利用直流磁控溅射方法制备了  $[\text{Fe}(x)/\text{Pt}(x)]_n$ , 其中  $x = 0.5, 1.0, 1.5, 2.0, 2.5\text{ nm}$ , 对应  $n = 40, 20, 13, 10, 8$ , 以保证多层膜的总厚度为  $40\text{ nm}$  左右.所有样品均在  $350\text{ }^\circ\text{C}$  热处理  $20\text{ min}$ .

图 6 给出了样品的矫顽力随  $[\text{Fe}(x)/\text{Pt}(x)]_n$  多层膜中 Fe 层 (或 Pt 层) 厚度  $x$  的变化关系.图 6 表明,当  $x = 1.5\text{—}2.0\text{ nm}$  时,样品的矫顽力最大.当  $x = 0.5\text{ nm}$  时,样品的矫顽力只有约  $23.9\text{ kA/m}$ ,说明样品在  $350\text{ }^\circ\text{C}$  热处理后,未发生有序化转变. Kim 和 Shima 等指出,利用磁控溅射方法沉积 FePt 薄膜时为岛状生长模式<sup>[10,11]</sup>,因此当周期厚度很小时无法形成连续的 Fe (或 Pt) 原子层,样品的性能接近于单层膜.相反,当半周期厚度大于  $2\text{ nm}$  时,由于单位厚度内界面的减少,多层膜界面提供的额外驱动力减少,有序化过程减缓,矫顽力降低.

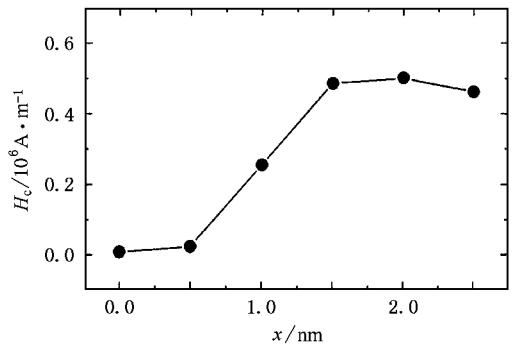


图 6  $[\text{Fe}(x)/\text{Pt}(x)]_n$  多层膜在  $350\text{ }^\circ\text{C}$  热处理  $20\text{ min}$  后的矫顽力

## 4. 结 论

Fe/Pt 多层膜化可以降低 FePt 薄膜有序化转变温度.  $[\text{Fe}(1.5\text{ nm})/\text{Pt}(1.5\text{ nm})]_3$  薄膜在  $350\text{ }^\circ\text{C}$  热处理  $20\text{ min}$  后,有序度已经增加到  $0.6$ , 相应的矫顽力达到了  $501\text{ kA/m}$ . 多层膜化促进有序化在较低的温度下进行,这是由于热处理过程中多层膜界面的消失提供了有序化过程额外的驱动力.当多层膜的周期在  $3.0\text{—}4.0\text{ nm}$  时,在  $350\text{ }^\circ\text{C}$  热处理后可以得到较高的矫顽力.

[1] Choe G, Zhou J N, Demczyk B *et al* 2003 *IEEE Trans. Magn.* **39** 633  
 [2] Weller D 2000 *IEEE Trans. Magn.* **36** 10  
 [3] Yang T, Kang K, Yu G H *et al* 2002 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **35** 2897  
 [4] Wang Y Z, Zhang M C, Qiao Y *et al* 2000 *Acta Phys. Sin.* **49** 1600 (in Chinese) [王亦忠、张茂才、乔 祎等 2000 物理学报 **49** 1600]  
 [5] Shima T, Monriguchi T, Mitani S *et al* 2002 *Appl. Phys. Lett.* **80** 288

[6] Hsu Y N, Jeong S, Laughlin D E *et al* 2001 *J. Appl. Phys.* **89** 7068  
 [7] Maeda T, Kai T, Kikitsu A *et al* 2002 *Appl. Phys. Lett.* **80** 2147  
 [8] Endo Y, Kikuchi N, Kitakami O *et al* 2001 *J. Appl. Phys.* **89** 7065  
 [9] Takahashi Y K, Hono K, Shima T *et al* 2003 *J. Magn. Mater.* **267** 248  
 [10] Kim M G, Shin S C 2002 *Appl. Phys. Lett.* **80** 3802  
 [11] Shima T, Takanashi K, Takahashi Y K *et al* 2002 *Appl. Phys. Lett.* **81** 1050

# Lowering of ordering temperature for $L1_0$ -FePt in Fe/Pt multilayers<sup>\*</sup>

Li Bao-He<sup>1,2)</sup> Hwang Pol<sup>1,3)</sup> Yang Tao<sup>1)</sup> Zhai Zhong-Hai<sup>1)</sup> Zhu Feng-Wu<sup>1)</sup>

<sup>1)</sup>( Department of Material Physics and Chemistry , University of Science and Technology Beijing , Beijing 100083 , China )

<sup>2)</sup>( Department of Mathematics and Physics , Beijing Technology and Business University , Beijing 100037 , China )

<sup>3)</sup>( Department of Physics , Kim Il Sung University , Pyongyang , DPRK )

( Received 19 August 2004 ; revised manuscript received 6 September 2004 )

## Abstract

Fe/Pt multilayers and FePt thin films were prepared by DC magnetron sputtering. The as-prepared samples were subjected to vacuum annealing at temperatures in the range of 300—550 °C. The multilayered structure is an effective approach for reducing the ordering temperature of FePt. The ordering parameter  $S$  is evaluated to be 0.6, and correspondingly the coercivity is evaluated to be 501 kA/m in  $[Fe(1.5\text{ nm})/Pt(1.5\text{ nm})]_3$  multilayers annealed at 350 °C for 20 min. Relatively low ordering temperature for the multilayer is due to the extra driving force of ordering process caused by the vanishing of the multilayer interface at annealing.

**Keywords :**  $L1_0$ -FePt order phase , magnetron sputtering , ordering parameter , Fe/Pt multilayer

**PACC :** 7550S , 7570F , 6150C

---

<sup>\*</sup> Project supported by the National Natural Science Foundation of China ( Grant No. 50301002 ) and the Science and Technology Nova Program of Beijing , China ( Grant No. H020821290120 ).